

APPARATUS AND METHOD OF FABRICATING A MONOLITHIC SOLID OXIDE FUEL CELL

Publication number: JP6502957T

Publication date: 1994-03-31

Inventor:

Applicant:

Classification:

- International: **H01M8/02; H01M8/12; H01M8/24; H01M8/02; H01M8/12; H01M8/24;** (IPC1-7): H01M8/02; H01M8/12

- European: H01M8/24B2H4

Application number: JP19910515600T 19910710

Priority number(s): WO1991US04854 19910710; US19900580886 19900911; US19900580722 19900911

Also published as:

WO9204740 (A1)
EP0549695 (A1)
EP0549695 (A0)
EP0549695 (B1)
CA2090683 (C)

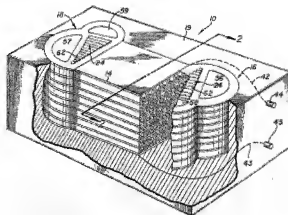
more >>

[Report a data error here](#)

Abstract not available for JP6502957T

Abstract of corresponding document: **WO9204740**

The invention details a two-step densifying process, method, and apparatus for making a solid oxide ceramic fuel cell (20). According to the invention, a limited number of anode (30)-electrolyte (31)-cathode (32) cells separated by a single or trilayer interconnect (33) are formed and densified. Subsequently, a plurality of the densified cells are stacked and further processed to form a monolithic array.



Data supplied from the esp@cenet database - Worldwide

(19)日本国特許庁(JP)

(12) 公表特許公報(A)

(11)特許出願公表番号

特表平6-502957

第7部門第1区分

(43)公表日 平成6年(1994)3月31日

(51)Int.Cl.⁸H 0 1 M 8/02
8/12

識別記号

庁内整理番号
E 8821-4K
8821-4K

F I

審査請求 有 予備審査請求 有 (全 13 頁)

(21)出願番号 特願平3-515600
 (86)(22)出願日 平成3年(1991)7月10日
 (86)翻訳文提出日 平成5年(1993)3月8日
 (86)国際出願番号 PCT/US91/04854
 (87)国際公開番号 WO92/04740
 (87)国際公開日 平成4年(1992)3月19日
 (31)優先権主張番号 580, 722
 (32)優先日 1990年9月11日
 (33)優先権主張国 米国(US)
 (31)優先権主張番号 580, 886
 (32)優先日 1990年9月11日
 (33)優先権主張国 米国(US)

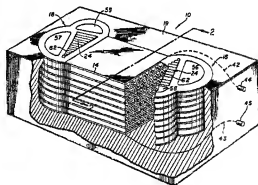
(71)出願人 アライド・シグナル・インコーポレーテッド
 アメリカ合衆国 ニュー ジャージー州
 07962-2245, モーリスタウン, ビー, オー,
 ボックス 2245-アール ロー デバ
 ーメント (シー, エー, マクナリイ)
 (72)発明者 ミンフ, ナグエン キュー,
 アメリカ合衆国 カリフォルニア州
 90708, ファウンテン バリー, クウォー
 ツ ストリート 11701
 (74)代理人 弁理士 高山 敏夫

最終頁に続く

(54)【発明の名称】 モノリシック固体酸化物燃料電池を製造する装置および方法

(57)【要約】

本発明は2工程圧縮工程法および固体酸化物燃料電池(20)を製造する装置を詳細に開示する。本発明によればアノード(30)、電解質(31)、カソード(32)、およびこれらを互いに分離する単一の連結体(33)からなる所定数のセルが形成され圧縮される。次に複数の圧縮されたセルが積層され処理されてモノリシックアレイが形成される。



請求の範囲

1. アノード(30)、カソード(32)および連結部(33)を形成するために必要なパダグを夫々結合系と混合して各々のパダグ材料を形成する工程と、各パダグ材料の薄手のテープを形成する工程と、アノード(30)テープを電解質(31)の対向側の電解質(31)およびカソード(32)に付設して3層電解質(36)テープを形成する工程と、3層電解質(36)を成形しアノード(30)に貼つて延びる燃料通路(20)および3層電解質(36)のカソード(32)に貼つて延びる酸化剤通路(26)を形成する工程と、3層電解質(36)テープを切断して実質的に全体が所定の形状を示す複数の3層電解質(36)部材を形成する工程と、連結部(33)テープを切断して実質的に全体が所定の形状を示す複数の連結部材(38)を形成する工程と、結合系を除去し夫々のセラミック材料の焼結を少なくとも開始させるに充分な温度まで3層電解質(36)部材および連結部材(38)を加熱する工程と、加熱工程の後複数の連結部材(38)を少なくとも一部焼結された複数の3層電解質(36)と交互に積層する工程と、復層されたアレイ(48)を処理して交互に積層された3層電解質(36)および連結部材(38)の接界面を接合する工程と、夫々所定のモノリシック固体酸化物燃料電池(10)の製造法。

2. 更に、放射、対流およびマイクロ波による加熱からなる部から選択される一処理あるいはそれらの組み合わせにより夫々の3層電解質(36)部材および連結部材(38)を、所定の最終密度のセラミック材料の焼結による全体の材料収縮の少なくとも25%まで夫々のセラミック材料を焼結するに充分な

温度まで上昇させる工程とを包含してなる請求項1記載の製造法。

3. 加熱工程において夫々のセラミック材料を夫々の材料の所定の最終密度の割合までセラミック材料を焼結するに充分な温度になるように、3層電解質(36)部材および連結部材(38)の温度を上昇せしめ、アレイ(48)の次の加熱・焼結により復層アレイ(48)の全てのセラミック材料を適応収縮させる復層アレイ(48)の次の加熱・収縮中に連結部(33)のセラミック材料、復層アレイ(48)の隣接する層内への拡散を抑える請求項1記載の製造法。

4. 各々カソード(32)と電解質(31)とアノード(30)とを有する複数の電池ユニット(40)を得え、各電池ユニット(40)が連結部(33)を介し互いに分離されるモノリシック固体酸化物燃料電池(10)の製造法において、夫々少なくとも一部が焼結されたカソード(32)のセラミック材料、電解質(31)のセラミック材料およびアノード(30)のセラミック材料の各々の層を有する複数の3層電解質(36)部材を組み立て、3層電解質(36)部材を所定の構成の3層電解質(36)部材に形成させる燃料通路(20)および酸化剤通路(26)を区画する工程と、夫々所定の構成をもつて少なくとも一部焼結された連結部(32)のセラミック材料を有する複数の連結部材(38)を形成する工程と、3層電解質(36)部材のアノード(30)の面および連結部材(38)の1つの面をアノード(30)のセラミック材料と結合系材料と部材とを混合して粘性的スラリーとして得るアノード結合剤で固着する工程と、3層電解質(36)のカソード(32)の面お

よび連結部材(38)の対向面をカソード(32)のセラミック材料と結合系材料と部材とを混合して粘性的スラリーとして得られるカソード結合剤で固着する工程と、少なくとも一部焼結された3層電解質(36)部材を複数の連結部材(38)と交互に積層し復層アレイ(48)を形成する工程と、復層アレイ(48)を処理して交互に積層された3層電解質(36)および連結部材(38)の接界面を接合する工程とを包含してなるモノリシック固体酸化物燃料電池(10)の製造法。

6. 更に、アノード(30)に対し安定化ジルコニアを含むコバルトあるいはニッケル金属、カソード(32)に対しストロンチウムを添加したランタナマンガナイト、電解質(31)に対しイトリウムで安定化されたジルコニアおよび連結部(33)に対し添加ランタノクロミットのサーメットを塗布する工程と、アノード(30)材料、カソード(32)材料および連結部材(33)材料と適合するアノード結合剤およびカソード結合剤の結合系材料を塗布し、結合系材料には焼結することなく熱分解する合成ゴム、プラスチック、ポリビニルアルコール、ポリビニルアクリル樹脂およびポリマ系からなる部から選択される結合剤およびアノード結合剤の部材のベンジリルアクリレートおよび部材からなる部から選択される可塑剤を含む工程と、アノード結合剤およびカソード結合剤の溶剤としてイソプロピルアルコールを選択する工程とを包含してなる請求項1～5のいずれか一記載の製造法。

7. 復層工程には、3層電解質(36)部材のアノード(30)と連結部材(38)の接界面をアノード結合剤で固着する工程と、3

層電解質(36)部材のカソード(32)および連結部材(38)の接界面をカソード結合剤で固着する工程とを包含され、各々の結合剤にはアノード結合剤に対しアノード(30)のセラミック材料のパダグを、且つカソード結合剤に対しカソード(32)のセラミック材料のパダグを混合して含まれてなる請求項1～5のいずれか一記載の製造法。

8. 結合材料には、焼結することなく熱分解する合成ゴム、プラスチック、ポリビニルアルコール、ポリビニルアクリル樹脂、セルロースおよびポリマ系からなる部から選択される結合剤と、フタルート基のベンジリルアクリレートおよび部材からなる部から選択される可塑剤と、溶剤とが含まれ、溶剤、セラミック材料、結合剤、可塑剤を混合して粘性的スラリーを生成してなる請求項7記載の製造法。

9. 結合材料には更にセラミックサーメット、ガラスセラミック、有機金属シリル材料およびシリルコシアセ化物からなる部から選択される少なくとも1の材料を含むセラミックペースト材料が含まれてなる請求項7記載の製造法。

10. 処理工程には更に放射、対流およびマイクロ波による加熱のいずれか1つあるいはそれらの組み合わせにより所定の最終密度になるように各々のセラミック材料を焼結するに充分な温度まで復層アレイ(48)の温度を上昇させる工程が包含されてなる請求項1～5のいずれか一記載の製造法。

11. 3層電解質(36)を成形し燃料通路および酸化剤通路を形成する工程には更に3層電解質(36)テープのアノード(30)層およびカソード(32)層の夫々の面を予め存在する平坦面から各面

の通線部分を定位させて凸部を残しリブ、フィンあるいは柱状のアノード(30)およびカソード(32)を製造することにより実形せしめる工程が包含されてなる請求項1～5のいずれか一記載の製造法。

12. 燃料路および酸化剤路を形成する工程には更に3層電解質(38)部材を設けあるいは所置し製造に実形する工程が包含されてなる請求項1～5のいずれか一記載の製造法。

13. 更に、複数の3層電解質(38)部材および複数の通線部材(38)を構成して内部に整合した二体燃料ロマンニホルド、燃料出口ロマンニホルド、酸化剤入口ロマンニホルドおよび酸化剤出口ロマンニホルド(56、57、58、59)を離隔して形成する工程と、複数の電解質(31)層のアノード(30)に沿って延びる燃料通路(20)を収納し燃料通路(20)を燃料出口ロマンニホルド(58)から燃料出口ロマンニホルド(57)へ延長する工程と、複数の電解質(31)層のカソード(32)に沿って酸化剤通路(26)を収納し酸化剤通路(26)を酸化剤入口ロマンニホルド(58)から酸化剤出口ロマンニホルド(59)へ延長する工程とが包含されてなる請求項1～5のいずれか一記載の製造法。

14. 各々カソード(32)と電解質(31)とアノード(30)とを有し通線体(32)を介し互いに分離される複数の複層セル(48)からなるモノリシック固体酸化燃料電池(10)の製造装置において、夫々少なくとも一部焼結されたカソード(32)セラミック材料、電解質(31)セラミック材料およびアノード(30)セラミック材料の各層を有し、内部に燃料路および酸化剤路が所定の構造で形成される複数の電解質(31)部材と、夫々少なくとも

一部焼結された通線体(32)セラミック材料を所定の構造で含み複数の電解質(31)部材と交互に積層され積層アレイ(48)を形成する複数の通線部材(38)と、少なくとも一部焼結された通線部材(38)を少なくとも一部焼結された電解質(31)部材と隣接する結合隔壁を備える製造装置。

15. 結合隔壁には更に通線部材(38)の一方の面を電解質(31)部材のアノード(30)に対し隣接するためアノード(30)セラミック材料、結合隔壁材料および溶剤を粘性のスラリーとして混合されたバグダを含むカソード結合層とが包含されてなる請求項14記載の製造装置。

16. アノード結合層およびカソード結合層にはそれぞれ更に粘性のスラリーに混合される通線体(32)のセラミック材料あるいは白金バグダが含まれてなる請求項15記載の製造装置。

17. 結合隔壁には更にセラミックセメント、ガラスセラミック、有機金属ゾルゲル材料およびジルコニア酸化物からなる群から選択される少なくとも1を含むセラミックペースト材料が包含されてなる請求項15記載の製造装置。

18. 焼結することなく熱処理する合成ゴム、プラスチック、ポリビニルアルコール、ポリビニルアルコール樹脂およびポリマ系からなる群から選択される結合剤と、フレート部のアルベニルフレートおよび溶剤からなる群から選択される可塑剤と、溶剤とが包含され、セラミック材料、結合層、

可塑剤および溶剤が混合され粘性のスラリーを生成してなる、モノリシック固体酸化燃料電池(10)の予め焼結されたセラミック部材の接合面を接着するために使用する結合剤。

19. アノード(30)、カソード(32)および通線体(32)を作るのに必要なバグダを夫々結合系と混合して各々のパッチ材料を形成する工程と、各パッチ材料の薄いテープを形成する工程と、アノード(30)テープを電解質(31)の対向側の電解質(31)およびカソード(32)に付設して3層電解質(36)テープを形成する工程と、3層電解質(36)を成形しアノード(30)に沿って延びる燃料通路(20)および3層電解質(36)のカソード(32)に沿って延びる酸化剤通路を形成する工程と、3層電解質(36)テープを切断して実質的に全体が所定の形状を示す複数の3層電解質(38)部材を形成する工程と、通線体(32)テープを切断して実質的に全体が所定の形成を示す複数の通線部材(38)を形成する工程と、結合系を除去し夫々のセラミック材料の焼結を少なくとも開始させるに充分な温度まで3層電解質(38)部材および通線部材(38)を加熱する工程と、加熱工程の後複数の通線部材(38)を少なくとも一部焼結された複数の3層電解質(38)と交互に積層する工程と、積層されたアレイ(48)を処理して交互に積層された3層電解質(38)および通線部材(38)の接合面を接着する工程とを包含してなる処理工程により製造されるモノリシック固体酸化燃料電池(10)。

20. 各々カソード(32)と電解質(31)とアノード(30)とを有する複数の電池ユニット(40)を備え、各電池ユニット(40)が通線体(32)を介し互いに分離されるモノリシック固体酸化燃料

電池(10)において、夫々少なくとも一部焼結されたカソード(32)のセラミック材料、電解質(31)のセラミック材料およびアノード(30)のセラミック材料の各々の層を有する複数の3層電解質(38)部材を組み立て、3層電解質(38)部材内に予め存在する平坦面からアノード(30)の各面の通線部を定位して凸部を残すことによりアノード(30)の構成に燃料通路(20)および酸化剤通路(26)を形成し所定の複数の3層電解質(38)部材に形成する工程と、夫々所定の構成で少なくとも一部焼結された通線体(32)のセラミック材料を有する複数の通線部材(38)を形成する工程と、3層電解質(38)部材のアノード(30)の面および通線部材(38)の一面を、アノード(30)セラミック材料、通線体(32)セラミック材料、結合隔壁材料バグダと溶剤を粘性のスラリーとして混合させたアノード結合層と隣接する工程と、3層電解質(38)のカソード(32)の面および通線部材(38)の対向面を、カソード(32)のセラミック材料と通線体(32)のセラミック材料と結合層材料バグダとを溶剤を介し混合して粘性のスラリーとして混合させたカソード結合層で覆覆する工程と、少なくとも一部焼結された3層電解質(38)部材を複数の通線部材(38)と交互に積層し積層アレイ(48)を形成する工程と、積層アレイ(48)を処理して交互に積層された3層電解質(38)および通線部材(38)の接合面を接着する工程とを包含してなる処理工程により製造されるモノリシック固体酸化燃料電池(10)。

明 細 書

モノリシック固体酸化燃料電池を
製造する装置および方法

(技術分野)

本出願は米国特許第 4,816,028号の分割出願である1988年9月27日出願の米国特許出願第 249,804号の一部継続出願である。

(背景技術)

本発明は固体酸化燃料電池、特に燃料電池のコア部の製造方法に関する。燃料電池とは基本的に触媒反応空間内で燃料と酸化剤とが電気化学的に反応し、直接電気出力を発生する化学変換装置である。燃料電池においてはカソード材料により酸化剤の通路が区画され、アノード材料により燃料の通路が区画され、電解質によりカソード材とアノード材とが分離される。燃料および酸化剤は通常ガス液体であり、相互に分離された通路を連続的に流動する。一般に燃料電池から放出される燃料および酸化剤により、電池内で発生される熱および反応生成物が除去される。燃料および酸化剤は作動媒体であり通常燃料電池の一部とは考えられていない。

本発明において採用される燃料電池の構造は固体電解質あるいは固体酸化燃料電池として知られているものであり、電解質は燃料電池内では固体状態である。固体酸化燃料電池では水素あるいは炭化水素燃料が燃料として使用されることが好ましく、酸素あるいは空気は酸化剤として使用され、このとき燃料電池の動作温度700℃～1100℃の間にあ

る。燃料電池に通過せしめられる水素はアノードにおいて酸素イオンと反応して水を生じ、燃料室内で移動され、電子がアノード材料内に放出される。酸素はカソード側の電子と反応して酸素イオンを生じ、この酸素イオンは電解質内を通過する。電子はアノードから好適な外部回路を経てカソードへ流れ、酸素イオンの電解質内への移動により内部において閉回路が形成されることとなる。反応工程日知用であり、詳しくは米国特許第4,449,865号および第4,815,035号に開示されている。

電解質により燃料と酸化剤とが互いに分離され、媒体により酸素イオンが移動され、電解質の対向側において電圧上昇が生じる。燃料および酸化剤は夫々の通路を設けて電解質へ拡散され、電極（アノード若しくはカソード）の表面あるいはその近傍で反応し、電解質で電子化学的変換が生じる。電極により燃料電池内において電流が電子へ向かって内部で移動する通路が与えられ、この端子には外部負荷が接続される。各電極の間の動作電圧は0.7ボルト台であり、各電極は直列に接続され、負荷電圧を有効に与えるように構成される。

米国特許第 4,478,198号（アッカーマンによる）には電気化学的反応で生成の材料のみからなるモノリシックコアが開示される。この場合薄手の複合コア膜は小さな通路を区画するように形成される。コア壁が変形なく構成されていれば、完全に連続的な一休性を有し通路が流れるガスにより発生する流体圧あるいは圧力に耐えられるコア壁の重量による機械的な応力に耐えられるものと考えられる。このモノリシック

構造により、サイズおよび重量が減少されて燃料電池の電力密度が上昇し得ましい。

米国特許第 4,478,198号（ポツル等による）には互いに横断するように延びる燃料ガス路および酸化剤ガス路を有したモノリシック構造が開示されている。このコア構造においてはアノード材料のみにより各燃料路が区画され、且つカソード材料のみにより各酸化剤路が区画され、各アノードおよび各カソードは電解質材料と連絡材料との間で隔離された対向壁で選択的に提供される。複合アノード・カソード膜構造は互いに交互に重複され（分離した電解質または連絡材料は通常単一の共通層である）。このため燃料路および酸化剤路は互いに横断するが直交して位置する。

米国特許第 4,510,212号には燃料ガス路および酸化剤ガス路が平行および直交するコア構造が開示される。電極の各連絡壁は不活性炭素材料シートとして形成され、不活性シートには各シートの閉鎖部に隣接した連絡材料層、カソード材料層およびカソード材料層の小さなプラグが設けられ、連絡材料のプラグにより共に電気的に連結される。各連絡壁は波形状に形成され、次に隣隔され対をなす全体として平行な電解質壁の形で全体として平行な線のように隣隔された接触領域に沿って連結され、全体として平行な一列の燃料ガス路および酸化剤ガス路が区画される。また別の列は互いに直交に配置される通路を有するよう形成される。

従来のセルラ燃料電池のコア（米国特許第 4,478,198号参照）は所定の工程を経て作られ、4種の材料の配合物は4

種の別個のスラリーにされる。各スラリーは次にスカージー状の模様のタンクに入れられ、平準面に塗られ硬化された可塑化されて所望の厚さの材料層にされる。このように電解質壁あるいは連絡壁はアノード材料の第1の層により、その後は電極あるいは連絡材料層により且つ最終的にカソード材料層により形成される。結合部は各層において同一であるので、各層は互いに融合される。

米国特許第 4,816,028号（コタツタによる）には4種の材料の配合物が使用して可塑コンシステンシーに混合され、次に熱間ロールが行われて厚手のシートにされるセルラコアを形成する際の構成が指示される。厚手のシートは更に熱間ロールが行われて多層テープにされ、成形され、覆覆されモノリシック体（一体物）として焼結せしめられて、一体燃料・酸化剤マニホールドを有する燃料電池が作成される。

理論上は上述した特許の燃料電池の構造構造により機械的な電力密度が与えられることとなるが、燃料電池の覆覆はアノード・カソードおよびそれらに隣接する非活性な処理処理の電解質が連絡材料のアレイから形成される。各覆覆の未処理の層が互いに覆覆され、好適に配列されて覆覆構造が形成される。これにより得られた覆覆構造は全て未処理の焼結されてない部材となる。覆覆の構成部材は異なる材料で作られているので、熱膨張係数あるいは異なる材料の熱膨張係数に対応できるように調整されて分離を最小限に押さえる必要がある。全てが同時に焼結される未処理の先駆物質からなる燃料電池の覆覆体は熱膨張あるいは熱膨張熱に対応すべく当

接しない場合、両材料接合工程において各層に小さな亀裂が生じ良好な性能が得られない。複層体に小さな亀裂があると直接的な結果として反応ガスに混合が生じ、電流が理論電流密度より大幅に小さくなる。更に他の燃料電池の接合部材を好適な条件下で圧縮することが困難である。圧縮による連結が不十分であれば反応ガスが漏れることになる。

従来の燃料電池においては多層複層体が圧縮されるとセラミツク材、特に連結部材が隣接する層内に移行する別の問題が生じる。このようなセラミツク材が移行すると、密度、多孔度、均質性の物理的特性に悪影響が及び、第3の問題として同時燃焼中放熱係率に不整が生じることが挙げられる。燃料電池の構造体の寸法が大になると、未燃燃の放熱係率が燃焼工程で構造体の重量を保持するに充分な程度に達しない。従って基理方法および小さな亀裂、セラミツクの移行並びに放熱の不整を除去した燃料電池の提供が望まれる。

(発明の開示)

本発明は固体酸化燃料電池、特に燃料電池のコアおよび一体のマニホルドを有する構造に関する。本発明の一の目的は排気コンパクタを断面をもって隣接する小さな燃料ガス路および酸化剤ガス路を有した亜体酸化燃料電池を提供することにある。

燃料電池のコアを製造する方法にはアノード材料、カソード材料、電解質材料および連結材料と燃焼層を個別に混合する第1の工程が含まれる。第2の工程ではローレルあるいはスラリテープ製造により個々の層をなす厚手のテープを

形成する。第3の工程では好ましくはアノード・電解質・カソードあるいはアノード・連結部材・カソードからなる基理層の多層テープを形成する。第4の工程では未燃燃の多層テープを實質的に所望の形状の部材に切断し成形する。第5の工程では対をなすアノード・連結部材・カソード部材(あるいは単に連結部材)とアノード・電解質・カソード部材を組み合わせて接合する。第6の工程では組立てられたい対をなす部材を圧縮する。第7の工程では圧縮された対をなす部材を結合層で潤滑し、断面における相互の結合を促進させることにより、接合し結合し複層体を形成する。最後の工程では接合された装置を圧縮してモリシツクなコア装置を形成する。(図面の簡単な説明)

図1は本発明により形成される燃料電池を、明確化のため一部を切開いて示す斜視図、図2は図1の線2-2に沿って切開した部分拡大断面図、図3Aおよび図3Bは夫々電解質部材および連結部材の平面図、図4は本発明により形成された燃料電池の他の実施例の斜視図、図5は図4の燃料電池の部分拡大断面図、図6は本発明の燃料電池を形成するために必要な2工程の燃焼処理の説明図、図7A、図7B、図7Cは燃料電池のコア構造体の他の実施例の部分断面図である。

(図面を実施するための最良の形態)

図1には本発明によるモノリシツク固体酸化燃料電池(HSFC)10が示されており、モノリシツク固体酸化燃料電池10Cには燃料電池コア部14と燃料電池コア部14の各端部に設けられた入口マニホルド16と出口マニホルド18とが包含される。

コア部14およびマニホルド16、18は好適な絶縁体19内に配設され充塞される。図示しないが、燃料ラインが好適な燃料供給部および酸化剤供給部に連結される。

図2には図1のモノリシツク固体酸化燃料電池10の燃料電池コア部14が拡大して断面で示される。燃料電池コア部14内には互いに平行で隣接した通路が交互に配列される複数の燃料通路20および酸化剤通路26が形成される。燃料通路20は露出燃料通路21を区画するアノード材料30のみで形成されることが好ましく、一方酸化剤通路26は酸化剤通路27を区画するカソード材料32のみで形成されることが好ましい。互いに隣接する燃料通路20および酸化剤通路26は電解質膜36あるいは燃料通路38により分離される。電解質膜36はアノード材料層30とカソード材料層32とその間に配設される電解質材料層31との3枚の厚手の複層体として構成される。燃料通路38はアノード材料層30とカソード材料層32とその間に配設される連結材料層33との3枚の厚手の複層体として構成される。2枚の連結材料層33により最小1個の電池ユニット40が区画されるが、全体のモノリシツク固体酸化燃料電池10では、隣接する2個の電池ユニット40が燃料通路38を共用して配設されている。アノード材料層30、カソード材料層32、電解質材料層31および連結材料層33は次の3条件、即ち(1)カソード、アノードおよび連結部材が電気的に導電性であること、(2)電解質がイオンを移送し電子に対しては絶縁すること、(3)カソードおよびアノードがガスを通ずる性質を有し電解質および連結部材がガスを通ずる性質を有すること、を満足するよう

適宜に選定・変更される。同時に構造の一体性、熱膨張・収縮比、および複合モノリシツクコア部は最適効率を得るに必要な温度、圧力、ガス流量、電圧および電流密度の動作パラメータを持つように設計される。

本発明の好ましい実施例によれば、連結材料層および電解質材料層は厚手(0.002~0.005cm)で、一方これを挟持するカソード材料層およびアノード材料層が薄く(0.001cm以下)とされる。この厚さの10倍(0.002~0.05cm)にされる。

モノリシツク固体酸化燃料電池10は、単位距離量に対し燃料および酸化剤の露出面積が增大され、更に燃料電池コア部14内には活性材料(アノード、カソード、電解質および連結体)のみが含まれるので、モノリシツク固体酸化燃料電池10の電力密度が増大する。燃料電池コア部14の燃料通路20および酸化剤通路26を極めて小さくし、厚手に露出燃料通路21および露出酸化剤通路27を厚手にできると共に互いに区画された燃料通路20および酸化剤通路26を横切って短距離で自己交差されるから、電圧降下が低く、抵抗損失が減少され、厚手の交差によらないことによる抵抗損失が最小限に抑えられる。

入口マニホルド16および出口マニホルド18はそれぞれ酸化剤通路58、59、燃料通路56、57および曲がり部24が含まれる。曲がり部24には複数の燃料マニホルド通路62と複数の酸化剤マニホルド通路64とが具備され、このマニホルド通路64については後述する。

本発明のモノリシツク固体酸化燃料電池10は平行、対向

あるいは循環する2つの作動流体に対し使用出来るものと考えられる。明確化のため平行流システムが採用されており、従つて入口マニホールド18は燃料導管56および酸化剤導管58を区画するように設けられ、一方出口マニホールド18は燃料導管57および酸化剤導管59を区画するように設けられるものとする。各マニホールド18は更に曲がり部24が有されている。

更にモノリシック固体酸化物燃料電池10の電気化学的に活性な燃料電池コア部は燃料電池コア部14に対し燃料および酸化剤を入出力移送する導管42、43に接続され、断熱体19に収納されたとき完全な断熱燃料電池となることが産業者に理解されよう。導管42、43は断熱体19を介し外部の端子44、45に接続される。

一方、燃料電池の従来のマニホールドは電気化学的に活性ではないので、燃料電池の電力および重量密度が特に平行流燃料電池の場合に不十分である。また従来の燃料電池の導管は分離した部材であるので、密封部を設けて燃料および酸化剤の漏れを防止する必要があつた。これに対し、本発明の好適な実施例によれば、従来の燃料電池のこれらの制限が避けられることが理解されよう。ガス燃料は燃料供給管（図示せず）から入口マニホールド18内に形成される燃料導管56へ移送され、燃料マニホールド通過部82および燃料電池コア部14内の燃料導管26を経て出口マニホールド18内に形成される燃料導管57へ送られる。同様に酸化剤は酸化剤供給管（図示せず）から入口マニホールド18内に形成される酸化剤導管58へ、且つ酸化剤マニホールド通過部84若しくは酸化剤導管26を経て出口マニホールド18

内に形成される酸化剤導管59へ送られる。酸化剤は燃料電池コア部14内に送られた燃料および酸化剤を分離する電解質壁38を横断して電気化学的に反応する。消費されなかつた燃料および酸化剤は出口マニホールド18を経て放出であらう。次に好適な断熱チャンバ（図示せず）内でモノリシック固体酸化物燃料電池10外部の反応生成物と燃焼され得る。

各電解質壁38はアノード材料層30と、電解質材料層31と、アノード材料層30およびカソード材料層32の間に配設される電解質材料層31からなることは図2から明らかであらう。電解質壁38は夫々燃料導管20および酸化剤導管26内で移送される燃料および酸化剤と電気化学的に反応し、電解質壁38を横断して電気ポテンシャルが発生する。更に、対をなす互いに隣接した導管壁（例えば38a、38b）間に流動する全ての電解質壁38に対し、電極ユニット（例えば43a、43b）の電気浸潤列路が形成される。電解質壁38は導管壁38間において波形状に形成されるため、燃料導管20および酸化剤導管26は同様に対をなす互いに隣接した導管壁38間に交互に配設される。

図1及び図2には燃料電池コア部14を透過させて使用されるマニホールドシステムが示される。入口マニホールド18及び出口マニホールド18は燃料及び酸化剤の流入のダクト内に互いに隣接して形成される。入口マニホールド18および出口マニホールド18の夫々には好適な酸化剤供給管および燃料供給管と接続された酸化剤導管58、59および燃料導管56、57が形成される。以下に説明するが入口マニホールド18、出口マニホールド18および燃料電池コア部14は一体部対として形成することもできる。

図3 Aおよび図3 Bには一体に形成された入口マニホールド18および出口マニホールド18を有する燃料電池コア壁が示される。更に詳述するに、図3 Aは電解質壁38を、図3 Bは導管壁38を示している。図3 Aの電解質壁38のひだ部66は入口マニホールド18および出口マニホールド18の間に延び、導管壁38と交互に横断される。燃料導管20および酸化剤導管26が形成される。電解質壁38のひだ部68の各極部には複数のマニホールドひだ部70が設けられ、マニホールドひだ部70は互いに平行および燃料導管20および酸化剤導管26の両極部に設けられるマニホールドひだ部70と開口に延びる。各マニホールドひだ部70の高さは燃料導管20および酸化剤導管26の高さより低い（図5参照）。入口および出口の燃料マニホールド通過部82は燃料電池コア部の燃料導管20の極部から入口マニホールド18および出口マニホールド18へ延びる。同様に入口および出口の酸化剤マニホールド通過部84は酸化剤導管26の極部から入口マニホールド18および出口マニホールド18と一体に形成される酸化剤入口導管58および酸化剤出口導管59へ延びる。別の実施態様の横断図のモノリシック固体酸化物燃料電池10(KSOPC111)が図4および図5、図7に示されており、モノリシック固体酸化物燃料電池110にはコア部114、酸化剤入口マニホールド116、燃料入口マニホールド117、酸化剤出口マニホールド118および燃料出口マニホールド119が含まれている。また図5に横断図のモノリシック固体酸化物燃料電池110の分解斜視図が示される。モノリシック固体酸化物燃料電池110内には、アノード130、電解質138およびカソード132が電解質3層142内に形成される。

アノード130'およびカソード132'は波形、折り返し形あるいはリブ形（図7参照）に形成され、アノード130および波形のカソード132は夫々隣接する電解質131あるいは電解質3層142の両極部に付設される。アノード130'およびカソード132'の各層は互いに横断する角度で、好ましくは直角に波形部に対し配設される。導管壁138が横断され、電解質3層142から夫々の波形部の周側部の波形のアノード130'およびカソード132'に付設される。複数のこれらの層層素子により、横断流形のモノリシック固体酸化物燃料電池110が完成される。このモノリシック固体酸化物燃料電池110を構成する方法は以下に詳述する図1〜図3の平行流構造を形成する方法と同様である。

図6には本発明のモノリシック固体酸化物燃料電池10を製造する方法の断略図が示される。各材料のセラミックパグ、すなわちカソードにはストロンチウム添加のランタン・マグネシウム、電解質にはイットリア安定化ジルコニア、導管壁にはマグネシウム、カルシウム、コバルトあるいはストロンチウムが添加されたイットリウム・クロマイト、アノードには安定化ジルコニアを有するコバルトあるいはニッケル合金のチーメットがまず準備される。格子サイズは約1ミクロンから5ミクロンに及ぶ。夫々のパグは次に強力磨削（キナ80）内で所望の結合割合あるいは可塑割合と混合される。例えば、電解質材料を作るため、ジルコニアとイットリアが約87〜13重量パーセントになるよう混合される。結合割合および可塑割合は全固体の約10〜40%、好ましくは約18%を占める。結合剤

および可塑剤の量は夫々等しくされる。多孔性は大きなサイズの粒子を用いて、気孔生成物の添加あるいは高い割合の結合剤の使用により制御される。

通常使用する結合剤は合成ゴム、熱硬化プラスチック、ポリビニルアルコール、あるいは架橋することなく熱分解するポリマ系からなる群から選択される。選択した可塑剤は柔軟で弾性を有するものであり、且つ低粘度結合剤系、例えばビニルベンジルフタレートまたはタレトールの溶液を作ることが出来るものである。

セラミックパウダー、結合剤および可塑剤は室温で強力攪拌ミキサー30秒において混合される。この混合によりセラミックパウダー粒子が分散され、各セラミック粒子に結合剤が被覆される。またこの混合作用による摩擦により温度が150度まで上昇し、可塑剤が柔軟になる。通常混合時間は0.5〜10分であるが一般に2分で充分である。

この混合物は次にミキサーから取り出され、好ましくは混合により発生した熱を保持している間にテープ状になる。例示のようにテープ形成工程は好ましくはロールミル12により実行される。一方あるいはテープは押し出し、プレスあるいはテープ鋸造を含む他の方法により形成可能である。ロールミル法では各ローラは材料および所要の厚さによるが、一般に10〜150℃に加熱されたローリング装置で補助される。各材料、即ち、アノード材料、カソード材料、電解質材料および連結材料は夫々所要の厚さのテープ30、32、31、33にロールミル処理される。以下参照番号30、31、32、33は夫々の材

料およびその材料からなるテープ若しくは部材を指すとは理解されよう。以後、多層電解質または連結部テープ36、38は他のテープ30、31、32、33の少なくとも一つからロールミル処理される。この工程中各テープは隣接するテープに対し摩擦接合される。ここで重要なことはローリング工程中各テープ層間あるいはその内部に空孔が形成されない点にある。この結果得られた多層電解質あるいは連結部テープ36、38は必要に応じてカレンダー圧延処理されて厚さが更に減少される。モノリシック固体酸化物燃料電池10に燃料通路および酸化剤通路を設けるため、複数の燃料通路20および酸化剤通路26が、例えば炭アノード材料層10およびカソード材料層32に沿って延びるよう形成される。平行形状あるいは蛇形形状のモノリシック固体酸化物燃料電池10およびモノリシック固体酸化物燃料電池110の効率を増加するため、3層電解質テープ38を蛇形にして大きな表面積を与えることにより燃料通路20および酸化剤通路26を形成することが好ましい。これは圧縮モールド、真空成型あるいはギヤ成型することにより達成できる。重要な点は、この作業中材料損耗を防止して所望の厚さを維持することにある。

一方図4に示すような直交形状のモノリシック固体酸化物燃料電池110の場合、単一の3層電解質テープ142が好ましくはロールミル処理若しくはテープ鋸造、押し出しあるいはプレス工程により形成される。例えば図7A、図7B、図7Cに示すように、リップ150、152、フィン154、156あるいはポスト部材160、162は夫々予め存在する平面からアノード

130およびカソード132の夫々の面の連結部分を電位することによりアノード130およびカソード132の露出面に形成できる。これは圧縮モールドまたはプレス、ローリング、あるいは焼成3層電解質142内に切ることにより達成できる。フィン154、156またはポスト部材160、162が燃料あるいは酸化剤を3層電解質142の面に沿って近接した通路に強制的に移動するよう構成することは容易に理解される。

あるいはアノード130'またはカソード132'の一面シートが先ずロールミル処理あるいはテープ鋸造され、次に圧縮モールド若しくは摩擦の方法により蛇形または折り返し構造に形成され、3層電解質テープ142に付設される。

更に連結層138あるいは連結層140(アノード、連結層、カソード)の平坦な最上層は以下に説明するロールミルあるいはテープ鋸造法により形成される。夫々の平行形状あるいは蛇形形状の得られた3層テープ36、38、140、142および最上層テープ130'、132'、138は次に切断あるいはプレスにより、好ましくは全体の正確形状を有する複数の個別素子(素子)を形成する夫々のテープと同一の番号が付される)に形成される。全体の正確形状にはマニフェド16、18、116、117、118、119の素子および必要に応じ通路20、26、62、64を形成する構成が含まれることが好ましい。

次いで平行形状形成においては所定数の3層電解質および連結部材35、38あるいは単一の3層電解質部材142およびカソード部材132'並びにカソード部材132'の各々が積層され、互いに接合される。これは好ましくは結合剤なしに可塑剤

を一部部材内に溶解させる層で部材の接合を達成することにより達成される。例えばビニルアルコール溶液で部材面がブラシあるいはスプレー処理され、結合剤が溶解される。接合部材が組み立てられた後、アルコール溶液が蒸発され、結合剤により接合面が接合される。平行形状の製造の場合、底部にされた3層35の電解質が連結3層38(あるいは連結層38')と接合される。平行形状および直交形状の構成をとる場合、未処理状態の3層部材を接合するこの工程は、好ましくは10個のセル以下に限定され、必要に応じて電解質3層部材38および連結3層部材38(あるいは連結部材38')に限られる。

上述により形成された部材は次に好ましくは好ましい電阻オープン124内で酸酢、硝酸、マイクロ波加熱のいずれか一つあるいはその組み合わせによりアノード、電解質、カソードおよび連結セラミックを焼結するに充分な温度まで加熱されて熱処理される。この加熱工程中各々のセラミック材料は好ましくは焼結中取組の割合で面定して所望の最終密度の25%と100%との間まで焼結される。あるいは加熱処理は各々の材料に対し所望の最終密度になる割合まで夫々のセラミック材料を焼結するに充分な温度で行われ、次の加熱および焼結によりすべてのセラミック材料が適合保護される。焼結温度は密な電解質、多孔アノードおよびカソード、および密な連結体を含む所望の特性を得るよう選択される。連結部材38、38'、138あるいは140は夫々連結セラミック材料に対し所望の最終密度になる割合まで連結セラミック材料を焼結する

に充分な温度で熱処理されて、積層アレイの次の加熱および焼結中、導電セラミツク材料が積層アレイの間隔する層内に拡散することが知られる。該形の電解質層38あるいは組み立てられた電解質層142とアノード130'とカソード132'は上述したように別個に熱処理される。この圧縮された部材は次に処理できる温度まで冷却されることが好ましい。この最初の熱処理は組立体を一部のみに焼結する時点まで進める。従つて組み立てられた部材は所望の最終密度を得るに必要な材料の収縮を、固定して最終燃料電池に必要な金属結の少なくとも約25%まで焼結される。好ましくは組み立てられた部材はあこの最終密度の80~100%の間まで焼結される。

焼結され圧縮された部材は次に好適な手順でモノリシツク構造の積層装置48に組み立てられ接着される。圧縮された部材の組立中、接合面は結合剤50で覆われる。結合剤50は好ましくはアノード材料またはカソード材料、連絡材料、及びこれらに適合する結合剤、可塑剤と混合されて粘性スラリーにされる。結合剤50に填入する材料の選択は連絡する面による。2つのカソード面を接合するにはカソード材料のみが使用され、同様にアノード面を連絡面と接合するにはアノードと連絡材料の両方の材料が使用される。同様に2個のアノード面を接合するにはアノード材料のみが使用される。一方カソード面を連絡面と接合するにはカソード材料および連絡材料の両方が使用される。例えば結合剤50は選択したセラミツク部材材料とポリビニルアクリル樹脂、アクリルベンジルアクリレートおよびビソプロピルアルコールとを組み合わせる粘性スラ

リを作ることにより生成される。また結合剤50は選択したセラミツク部材材料をセラミツクペーストベース、ジルコニアセメント、セルロースエーテル化合物、ガラスセラミツクあるいは有機金属ソーダ材料のような材料と組み合わせることにより生成される。白金インクもしくは白金パウダも結合剤50に添加して燃料通路20'あるいはモノリシツク固体酸化燃料電池110'内の電気導電性を改善できる。

積層装置48は次いで好ましくは1600~1400℃の温度で動作するあるいは電磁オープン124内で熱処理され、結合剤50を焼結し圧縮する。例えば積層装置48は時間当たり10~50℃のランプ（坂路）速度で1200℃まで加熱される。温度は1時間の間1200℃に維持され、次に積層装置48は次第に冷却される。マイクロ波による加熱は28メガヘルツの周波数で行われることが好ましい。この加熱手順では結合剤50の有機分および揮発分が燃焼されるあるいはガスとして放出され、部材材料（アノード、カソード、連絡体）が焼結されて以てに焼結され圧縮された組立体の、互いに隣接する接合面が密着される。この2つの焼結および圧縮工程により、熱による亀裂、該形体の不均一および互いに隣接する層への部材材料の拡散が減少され、且つ極めて高い数のセルを有したモノリシツクコアが組み立てられる。焼結された組立体の積層モノリシツク体への組み立て中およびモノリシツク体の熱処理中、圧縮力が増えられ接合が向上され、互いに隣接するまで密着されることが理解される。

本発明はモノリシツク固体酸化燃料電池の製造する分野

には多くの利点を与えることが以上の説明から明らかであろう。好ましい実施例について上述したが本発明には設計変更および変置物も包含されることが当業者には理解されよう。従つて本発明はここに開示された構成に限定されず、部材のクレームのみに限定されるものである。

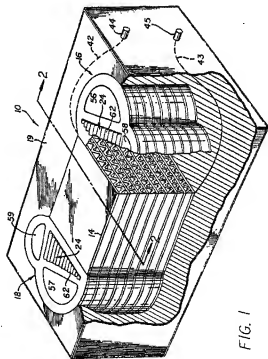
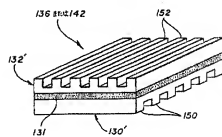
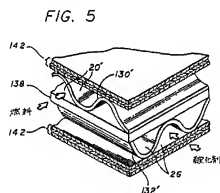
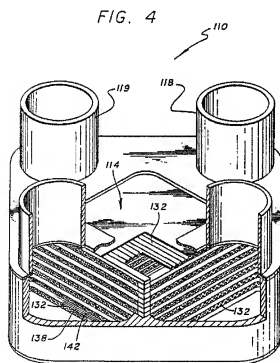
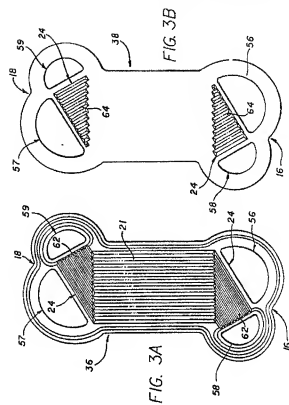
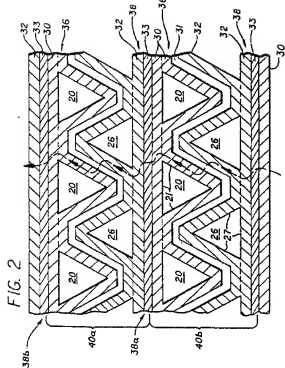


FIG. 1



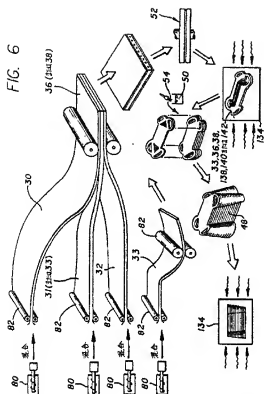


FIG. 6
 特許庁長官 審 査 官
 特許出願の表示 (特許出願第1846の8)

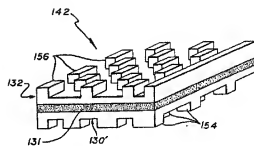


FIG. 7B

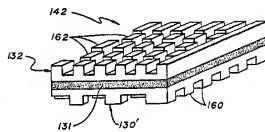


FIG. 7C

明 細 書

セリシク固体燃料電池を
 製造する装置および方法

〔技術分野〕

本発明は固体燃料電池、特に燃料電池のコア部の製造方法に関する。燃料電池とは基本的に触媒空間内で燃料と酸化剤とが電気化学的に反応し、直接電気出力を発生する化学換機装置である。燃料電池においてはカソード材料により酸化剤の通路が区画され、アノード材料により燃料の通路が区画され、電解質によりカソード材とアノード材とが分離される。燃料および酸化剤は通常ガス液体であり、相互に分離された通路を連続的に流す。一般に燃料電池から放出される燃料および酸化剤により、電池内で発生される熱および反応生成物が除去される。燃料および酸化剤は作動媒体であり通常燃料電池の一部とは考えられていない。

〔発明内容〕

本発明において採用される燃料電池の種類は固体電解質あるいは固体酸化物燃料電池として知られているものであり、電解質は燃料電池内では固体状態である。固体酸化物燃料電池では水素あるいは炭化水素燃料が燃料として使用されることが好ましく、酸素あるいは空気は酸化剤として使用され、このとき燃料電池の動作温度700℃～1100℃の間にあり、

特許庁長官 審 査 官

1. 特許出願の表示 FCT/US91/04854

2. 発明の名称

セリシク固体燃料電池を製造する装置および方法

3. 特許出願人

住 所 アメリカ合衆国 ニュー ジャージー州 07961-2245,

モリスタウン, ビー, オー, ボックス 2245-アール

ロウ, デパートメント (シー, エー, マタナリ)

名 称 アライド・シグナル・インコーポレーテッド

代 理 者 クォルシム, コパート, ニュー,

国 籍 アメリカ合衆国

4. 代 理 人

住 所 〒160 東京都新宿区西新宿7丁目5番10号

第2ビルディングデザイン 7階

電 話 (03) 3365-1982番

氏 名 弁護士 (5308) 菊山 敏 夫

5. 特許出願の提出年月日

平成 4 年 7 月 22 日

6. 特許出願の図面

(1) 特許出願の図面 (特許出願)

1 通

図3 Aおよび図3 Bには一体に形成された入口マニホールド16および出口マニホールド18を有する燃料電池コア壁が示される。更に詳述するに、図3 Aは電解質壁36を、図3 Bは連絡壁38を示している。図3 Aの電解質壁36の**分岐部**は入口マニホールド16および出口マニホールド18の間に延び、連絡壁38と交互に積層されると、燃料通路20および酸化剤通路26が形成される。電解質壁36の下部88の平面部には複数のマニホールド**分岐部**が設けられ、マニホールド**分岐部**は互いに平行および燃料通路20および酸化剤通路26の両端部に設けられるマニホールド**分岐部**と閉口と延びる。各マニホールド**分岐部**の高さは燃料通路20および酸化剤通路26の高さより低い(図5参照)。入口および出口の燃料マニホールド通路62は燃料電池コア部の燃料通路20の端部から入口マニホールド16および出口マニホールド18へ延びる。同様に入口および出口の酸化剤マニホールド通路64は酸化剤通路26の端部から入口マニホールド16および出口マニホールド18と一体に形成される酸化剤入口通路58および酸化剤出口通路59へ延びる。別の実施態様の横断形はモノリシック固体酸化燃料電池10(400FC)110が図4および図5、図7に示されており、モノリシック固体酸化燃料電池110にはコア部114、酸化剤入口マニホールド116、燃料入口マニホールド117、酸化剤出口マニホールド118および燃料出口マニホールド119が設けられている。また図5に横断形形のモノリシック固体酸化燃料電池110の分解斜視図が示される。モノリシック固体酸化燃料電池110には、アノード130、電解質132およびカソード132が電解質3層142内に形成される。アノード

130'およびカソード132'は波形、折り返し形あるいはリブ形(図7参照)に形成され、アノード130'およびカソード132'に夫々隣接する電解質131'あるいは電解質3層142'の両端部に付設される。アノード130'およびカソード132'の各層は互いに横断する角度で、好ましくは互角に波形状におし配置される。連絡壁138が横断され、電解質3層142から夫々の波形状の両端部の波形のアノード130'およびカソード132'に付設される。複数のこのような層を積層により、横断形形のモノリシック固体酸化燃料電池110が完成される。このモノリシック固体酸化燃料電池110を構成する方向は以下に詳述する図1〜図3の平行波形態を形成する方法と同様である。

図6には本発明のモノリシック固体酸化燃料電池10を製造する方法の電極図が示される。各材料のセラミックパウダ、すなわちカソードにはストロンチウム添加のランタン・マグネシア、電解質にはイットリア安定化ジルコニア、連絡壁にはマグネシウム、カルシウム、コバルトあるいはストロンチウムが添加されたイットリウム・プロモイト、アノードには安定化ジルコニアを有するコバルトあるいはニッケル金属のサーフェットがまず準備され、粒子サイズは約1ミクロンから10ミクロンに及ぶ。夫々のパウダは次に強力攪拌ミキサー80内で所望の割合あるいは可塑剤と混合される。例えば、電解質材料を作るため、ジルコニアとイットリウムが約87〜13重量パーセントになるよう混合される。結合剤および可塑剤は金属合金の約10〜40%、好ましくは約18%を占める。結

合剤および可塑剤の量は夫々薄くされる。多孔性大きなサイズの粒子を用いて、多孔性燃料電池あるいは高い割合の結合剤の使用により明瞭される。

通常使用する結合剤は合成ゴム、熱硬化プラスチック、ポリビニルアルコール、あるいは溶解することなく無分解するポリ系からなる群から選択される。選択した可塑剤は柔軟性を有するものであり、且つ低温度で結合剤系、例えばブチルベンジルフタレートまたは**他の**油類を作ることもできるものである。

セラミックパウダ、結合剤および可塑剤は量産で強力攪拌ミキサー80において混合される。この混合によりセラミックパウダ粒子が分散され、各セラミック粒子に結合剤が被覆される。またこの混合作用による摩擦により湿度が150度まで上昇し、可塑剤が流動になる。通常混合時間は0.5〜10分であるが一般に2分で充分である。

この混合物は次にミキサーから取り出され、好ましくは混合により発生した熱を保持している状態にテープ状にされる。図示のようにテープ形成工程は好ましくはロールミル2により実行される。一方あるいはテープは押し出し、プレスあるいはテープ製造を含む他の方法により形成可能である。ロールミル法では各ローラは材料および所望の速度によるが、一般に10〜150℃に加熱されてローリング作業を補助される。各材料、即ち、アノード材料、カソード材料、電解質材料および連絡材料は夫々所望の厚さのテープ30、32、31、33にロールミル処理される。以下参照番号30、31、32、33は夫々の材

130およびカソード132の夫々の面の連絡部分を実装することによりアノード130およびカソード132の露出面に形成される。これは圧縮モールドまたはプレス、ローリング、あるいは層を3層電解質142内に切ることにより達成できる。フィイン154、156またはポスト部材160、162が形成あるいは酸化剤を3層電解質142の面に沿って延出した通路に強制的に移動するよう達成されることは容易に理解される。

あるいはアノード130'またはカソード132'の第一層シートが先ずロールミル処理あるいはテープ製造され、次に圧縮モールド若しくは同様の方法により波形状または折り返し構造に形成され、3層電解質テープ142に付設される。

更に**参照図1〜図3または図3Aあるいは図3B**140 (アノード、連絡壁、カソード)は以下に説明するロールミルあるいはテープ製造法により形成される。夫々の平行波形あるいは直交波形状の露出した3層テープ36、38、140、142および第一層テープ130'、132'、138は次に切断あるいはプレスにより、好ましい全体の正確形状を有する複数の個別粒子(溝子)を形成する夫々のテープと同一の番号が付される)に形成される。全体の正確形状にはマニホールド16、18、116、117、118、119の壁部および必要に応じて通路20、26、62、64を波形状にする構成が含まれることが好ましい。

次いで平行波形態構造においては所定数の3層電解質および連絡部材36、38あるいは第一の3層電解質部材142およびカソード部材132'並びにカソード部材132'の各々が横断され、互いに横断される。これは好ましくは結合剤ないしは可塑剤

平成 5 年 6 月 30 日

特許庁長官 藤 生 茂 樹

1. 事件の表示

平成 3 年 特 許 第 515600 号
P C T / U S 9 1 / 0 4 8 5 4

2. 発明の名称

モノリシック固体酸化物燃料電池を製造する装置および方法

3. 補正をする者

事件との関係 特許出願人

名 称 アライド・シグナル・インコーポレーテッド

4. 代 理 人

住 所 〒160 東京都新宿区西新宿7丁目6番10号

第21ソノバタデザイン7階

電話 (03) 3365-1992番

氏 名 井澤士(6108) 高山 隆 夫

5. 補正命令の日付

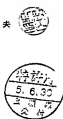
ナ シ

6. 補正の対象

「特許請求の範囲」の欄

7. 補正の内容

別紙のとおり



特表平6-502957 (12)

特許請求の範囲を次のように訂正する。

1. アノード(30)、カソード(32)および連結体(33)を作るために必要なバウダを夫々結合剤系と混合して各々のバッチ材料を形成する工程と、各バッチ材料の両手のテープを形成する工程と、アノード(30)テープを電解質(31)の対向面の電解質(31)およびカソード(32)に付設して3層電解質(36)テープを形成する工程と、3層電解質(36)を成形しアノード(30)に沿って延びる燃料通路(20)および3層電解質(36)のカソード(32)に沿って延びる酸化剤通路(28)を形成する工程と、切断により所定の形状を示す3層電解質(36)部材を形成する工程と、連結体(33)テープを切断して実質的に全体が所定の形状を示す複数の連結部材(38)を形成する工程と、結合剤系を除去し夫々のセラミック材料の焼結を少なくとも開始させるに十分な温度まで3層電解質(36)部材および連結部材(38)を加熱する工程と、加熱工程の後複数の連結部材(38)を少なくとも一部焼結された複数の3層電解質(36)と交互に積層する工程と、積層されたアレイ(48)を

処理して交互に積層された3層電解質(36)および連結部材(38)の接合面を積層する工程とを包含してなるモノリシック固体酸化物燃料電池(10)の製造法。

2. 各々カソード(32)と電解質(31)とアノード(30)とを有し連結体(33)を介し互いに分離される複数の燃料セル(40)からなるモノリシック固体酸化物燃料電池(10)用のアセンブリにおいて、夫々少なくとも一部焼結されたカソード(32)セラミック材料、電解質(31)セラミック材料およびアノード(30)セラミック材料の各層を有し、内部に燃料路および酸化剤路が所定の構造で形成される複数の電解質(31)部材と、夫々少なくとも一部焼結された連結体(33)セラミック材料を所定の構造で含み複数の電解質(31)部材と交互に積層され積層アレイ(48)を形成する複数の連結部材(38)と、少なくとも一部焼結された連結部材(38)を少なくとも一部焼結された電解質(31)部材と接する結合剤装置を備えるアセンブリ。」

要 約 説 明 書

PCT/JP 91/0484

1. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 2. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 3. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 4. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 5. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 6. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 7. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 8. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 9. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 10. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 11. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 12. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 13. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 14. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 15. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 16. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 17. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 18. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 19. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 20. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 21. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 22. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 23. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 24. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 25. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 26. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 27. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 28. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 29. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 30. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 31. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 32. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 33. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 34. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 35. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 36. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 37. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 38. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 39. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 40. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 41. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 42. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 43. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 44. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 45. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 46. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 47. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 48. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 49. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 50. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 51. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 52. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 53. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 54. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 55. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 56. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 57. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 58. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 59. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 60. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 61. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 62. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 63. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 64. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 65. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 66. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 67. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 68. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 69. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 70. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 71. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 72. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 73. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 74. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 75. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 76. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 77. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 78. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 79. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 80. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 81. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 82. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 83. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 84. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 85. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 86. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 87. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 88. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 89. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 90. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 91. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 92. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 93. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 94. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 95. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 96. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 97. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 98. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 99. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 100. SUBSEQUENT TO EXAMINATION		1. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 2. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 3. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 4. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 5. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 6. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 7. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 8. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 9. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 10. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 11. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 12. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 13. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 14. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 15. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 16. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 17. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 18. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 19. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 20. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 21. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 22. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 23. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 24. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 25. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 26. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 27. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 28. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 29. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 30. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 31. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 32. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 33. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 34. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 35. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 36. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 37. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 38. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 39. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 40. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 41. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 42. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 43. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 44. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 45. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 46. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 47. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 48. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 49. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 50. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 51. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 52. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 53. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 54. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 55. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 56. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 57. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 58. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 59. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 60. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 61. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 62. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 63. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 64. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 65. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 66. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 67. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 68. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 69. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 70. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 71. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 72. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 73. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 74. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 75. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 76. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 77. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 78. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 79. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 80. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 81. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 82. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 83. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 84. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 85. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 86. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 87. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 88. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 89. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 90. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 91. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 92. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 93. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 94. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 95. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 96. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 97. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 98. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 99. SUBSEQUENT TO EXAMINATION 100. SUBSEQUENT TO EXAMINATION
--	--	--

